VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESEN 1/3 001 2004

PCT

WIPO

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Akte	enzeic	hen de	es Anmelders oder Anwalts	14/2/2000		sioho Mittallun	Ober de Überen	
O.Z	Z. 618	83-W	О	WEITERES VOR	GEHEN	vorläufigen Pri	g über die Übersendung des internatio Ifungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/41	nalen .6)
1			Aktenzeichen 6356	Internationales Anmel 17.06.2003	dedatum (Tag/Monat/Jahr)	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 29.06.2002	
			atentklassifikation (IPK) oder	nationale Klassifikation	und IPK			·
C07	7C41	<i>l</i> 06						
						•		
	elder					-		
OX	ENO	OLE	FINCHEMIE GMBH					
1.	Die: bea	ser in uftrac	ternationale vorläufige Pr gten Behörde erstellt und	Ifungsbericht wurde v	on der n	nit der internatio	onalen vorläufigen Prüfung	
,			, and and	ma dem Allineider g	SIIIAD AI	nvei 20 abettilit	teit.	
2.	Dia	00# DI	EDICUT					
۷.	DIE	sei Di	ERICHT umfaßt insgesan	nt Si Blätter einschließ	lich dies	es Deckblatts.		
	×	Auß	Berdem liegen dem Berich	it ANLAGEN bei; dab	ei hande	lt es sich um Bl	ätter mit Beschreibungen, Ansprüc	hon
		uitu	voce Zeichhunden. die d	BANGEIT WIITGEN IING C	iocom H	ariabt zuazunda	atter mit Beschreibungen, Ansprüc liegen, und/oder Blätter mit vor die itt 607 der Verwaltungsrichtlinien z	
		PC	Γ).		iegei 70.	TO UNA ADSCINI	itt 607 der Verwaltungsrichtlinien z	um
	Dies	se An	lagen umfassen insgesan	ni 4 Blätter.				
<u> </u>								
3.	Dies	ser Be	ericht enthält Angaben zu	folgenden Punkten:				.:
	ı	\boxtimes	Grundlage des Beschei	ds				
	11		Priorität					
	Ш		Keine Erstellung eines	Gutachtens über Neu	neit, erfin	derische Tätigk	eit und gewerbliche Anwendbarke	it
	IV		Mangelnde Einheitlichke	eit der Erfindung		ū	ge were never the transaction and the transaction are the transaction and the transaction are the transaction are transaction and the transaction are transact	
	٧		geweiblichen Anweildb	arkeit; Onterlagen und) hinsich I Erkläru	tlich der Neuhe ngen zur Stützu	it, der erfinderischen Tätigkeit und ng dieser Feststellung	der
	VI		Bestimmte angeführte U	Interlagen			3	
	VII		Bestimmte Mängel der i					
	VIII	Ц	Bestimmte Bemerkunge	n zur internationalen	Anmeldu	ing		
D-4								
Datun	n aer i	Einreid	chung des Antrags		Datum o	der Fertigstellung	dieses Berichts	-
10.0	1.200	04			40.40			
					12.10.	2004		
Name	und f	ostan	schrift der mit der Internation	alen Prüfung	Bevolim	ächtigter Bediens	teter	
	- aylo	Eur	opäisches Patentamt				Gentuchas Palana	W.G
	<u>0</u>))	D-8 Tel.	10298 München . +49 89 2399 - 0 Tx: 523656	epmu d	Heibl,	С) W
	<u> </u>	Fax	:: +49 89 2399 - 4465	-F-1140 M	Tel. +49	89 2399-8331		. A. S.

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen

r internationalen Anmoldung /Ematzhlätter, die dem Anmoldeemt auf eine

PCT/EP 03/06356

	1-7	eingegangen am 10.05.2004 mit Schreiben vom 07.05.2004
	Ansprüche, Nr.	
	1-20	in der ursprünglich eingereichten Fassung
	Beschreibung, Seiten	
••	Aufforderung nach Artikel 14 hin	vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich veigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)):

Hinsichtlich der Sprache: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist. Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um: die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)). die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)). die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3). 3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das: in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist. zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist. bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist. bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist. Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt. Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt. 4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

Beschreibung,	Seiten:
Ansprüche,	Nr.:
Zeichnungen,	Blatt:
	Ansprüche,

Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den 5. 🗆 angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/06356

- 6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:
- V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- 1. Feststellung

Neuheit (N)

Ja: Ansprüche 1-7

Nein: Ansprüche

Erfinderische Tätigkeit (IS)

Ja: Ansprüche 1-7

Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) Ja: Ansprüche: 1-7

Nein: Ansprüche

Nein: Ansprüche:

2. Unterlagen und Erklärungen:

siehe Beiblatt

Zu Punkt V ----

Der am 15. März 2002 publizierte Artikel D1 (Angew. Chem.) beschreibt konkret die Telomerisierung von 1,3-Butadien mit Methanol als Nukleophil in Gegenwart eines Monocarben-Pd⁽⁰⁾-Komplexes der dort angegebenen Struktur 5 (s. Figur 1 in D1) als Katalysator. In diesem Artikel wird die Überlegenheit des untersuchten Carben-Pd-Komplexes 5 hinsichtlich Aktivität und Selektivität gegenüber "Standardkatalysatoren" wie Pd(OAc)₂/3PPh₂ ausdrücklich hervorgehoben und als vielversprechender Ausgangspunkt für die weitere Studien auch mit anderen (noch zu synthetisierenden) Monocarben-Pd⁽⁰⁾-Komplexen dargestellt.

Diesem Stand der Technik gegenüber unterscheidet sich das in der vorliegenden Anmeldung beanspruchte Telomerisierungsverfahren durch den Einsatz einer breiten Palette weiterer Carben-Metall-Komplexen sowie durch das Einsatzmaterial, das jetzt 1,3-Butadien in Mischung mit anderen C_{3} -, C_{4} - und/oder C_{5} -Kohlenwasserstoffen ist, wie sie beispielsweise bei Spalt(Crack)-Prozessen zur Herstellung von Ethen anfallen, in denen Raffineriegase, Naphtha, Gasöl, LPG, NGL etc. umgesetzt werden. Das beanspruchte Verfahren (Anspruch 1) kann somit als neu gelten (Art. 33(2) PCT).

Die mit Blick auf D1 zugrundeliegende Aufgabe kann in der Fragestellung gesehen. werden, ob die in D1 vorgeschlagene Telomerisierungsmethode auch auf industriell anfallende 1,3-Butadien enthaltende Mischungen mit C₃₋₅-Schnitten anwendbar sei. Tatsächlich wurde offenbar gefunden, daß die Telomerisierungsreaktion erfolgreich mit der anspruchgemäß definierten Palette von Carben-Komplexen von Metallen der 8. bis 10. Gruppe des Periodensystems der Elemente als mögliche Katalysatoren durchführbar ist, wenn in der 1,3-Butadienmischung enthaltene Alkine und ggf. 1,2-Butadien vor der Telomerisierungsreaktion entfernt worden sind. Dazu wurde ein Versuchsbericht vorgelegt, der den Reaktionserfolg in Abhängigkeit des Acetylengehaltes aufzeigt. In der Beschreibung gibt es kein Beispiel hierfür.

Sowohl für das Auffinden von zu in D1 konkret offenbarten Pdº-Carben-Komplexkatalysatoren alternativen Möglichkeiten bezüglich Carbenstruktur bzw. Natur des Komplexmetalls ("Metalle der 8. bis 10.Gruppe") wie auch für die Erkenntnis der negativen Reaktionsbeeinflussung durch die Anwesenheit von Alkinen im Einsatzgemisch scheint jedoch D1, als das einzig verfügbares vorveröffentliches Dokument, keine konkreten Anhaltspunkte zu liefern, die den Fachmann ohne weiteres zur vorliegenden Erfindung geführt haben könnten. Daher kann auch das Vorliegen

einer erfinderischen Tätigkeit (Art. 33(3) PCT) anerkannt werden.

Das beanspruchte Verfahren genügt auch dem Erfordernis der gewerblichen Anwendbarkeit (Art. 33(4) PCT).

(Es sei auch auf das P-Dokument WO 02/100803 A) hingewiesen, das Pd-Komplexe mit Carbenstrukturen vom Typ III und IV für die Telomerisierung nicht cyclischer Olefine beschreibt, wobei jedoch die Carben-Substituenten R²/R³ Alkyl- bzw. Arylgruppen darstellen, nicht aber heterocyclische Reste.

Es stellt aber im Rahmen des PCT-Prüfungsverfahrens keinen Stand der Technik nach Art. 33 (2) und (3) dar (vgl. Regel 64 PCT).)

10

15

20

Patentansprüche:

1. Verfahren zur katalytischen Telomerisation von nicht cyclischen Olefinen mit mindestens zwei konjugierten Doppelbindungen (I)

$$R^{x_1}$$
 R^{x_5}
 R^{x_2}
 R^{x_3}
 R^{x_3}
 R^{x_4}
 R^{x_5}
 R^{x_5}
 R^{x_5}
 R^{x_5}
 R^{x_5}
 R^{x_5}
 R^{x_5}

mit mindestens einem Nucleophil,

dadurch gekennzeichnet,

dass als nicht cyclische Olefine mit mindestens zwei konjugierten Doppelbindungen Mischungen von 1,3-Butadien mit anderen C₃-, C₄- und/oder C₅-Kohlenwasserstoffen eingesetzt werden, wobei Alkine und gegebenenfalls 1,2 Butadien vor der Telomerisationsreaktion entfernt werden, und

dass als Katalysator Komplexe eingesetzt werden, die Metalle der 8. bis 10. Gruppe des Periodensystems der Elemente und mindestens einen Carbenligand nach einer der allgemeinen Formeln

enthalten, mit

R^{X1}, R^{X2}, R^{X3}, R^{X4}, R^{X5}, R^{X6}: gleich H,

R²; R³: gleich oder verschieden a) lineare, verzweigte, substituierte oder unsubstituierte cyclische oder alicyclische Alkylgruppen mit 1 bis 24 Kohlenstoffatomen,

10

15

20

25

oder b) substituierte oder unsubstituierte, mono- oder polycyclische Arylgruppen mit 6 bis 24 Kohlenstoffatomen oder c) mono- oder polycyclischer, substituierter oder unsubstituierter

Heterocyclus mit 4 bis 24 Kohlenstoffatomen und mindestens einem Heteroatom aus der Gruppe N, O, S

 R^4, R^5, R^6, R^7 : gleich oder verschiedenen

> Wasserstoff, Alkyl, Heteroaryl, Aryl, -CN, -COOH, -COO-Alkyl-, -COO-Aryl-, -OCO-Aryl-, -OCOO-Alkyl-, -OCOO-Aryl-, -CHO, -CO-Alkyl-, -CO-Aryl-, -O-Alkyl-, -O-Aryl-, -NH2, -NH(Alkyl)-, -N(Alkyl)₂-, -NH(Aryl)-, -N(Alkyl)₂-, -F, -Cl, -Br, -I, -OH, -CF₃, -NO₂, -Ferrocenyl, -SO₃H, -PO₃H₂, wobei die Alkylgruppen 1 bis 24 und die Arylgruppen 5 bis 24 Kohlenstoffatome beinhalten und die Reste R⁴ und R⁵ auch Teil eines verbrückenden aliphatischen oder aromatischen Ringes sein können.

mit der Maßgabe, das in Kombination mit Pd als Metall der 8. bis 10. Gruppe des Periodensystems R² und/oder R³ die Bedeutung c) hat.

- 2. Verfahren nach Anspruch 1,
- dadurch gekennzeichnet, dass R², R³, R⁴, R⁵, R⁶ oder R⁷ jeweils gleich oder verschieden sind und mindestens einen Substituenten aus der Gruppe

-H, -CN, -COO+Alkyl, -COO-Aryl, -OCO-Alkyl, -OCO-Aryl, -OCO-Alkyl, -OCOO-Aryl, -CHO, -CO-Alkyl, -CO-Aryl, -Aryl, -Alkyl, -Alkenyl, -Allyl, -O-Alkyl, -O-Aryl, -NH2, -NH(Alkyl), -N(Alkyl)2, -NH(Aryl), -N(Alkyl)2, -F, -Cl, -Br, -I, -OH, -CF3, -NO₂, -Ferrocenyl, -SO₃H, -PO₃H₂ aufweisen, wobei die Alkylgruppen 1 bis 24, die Alkenylgruppen 2 bis 24, die Allylgruppen 3 bis 24 und die Arylgruppen 5 bis 24 Kohlenstoffatome beinhalten.

30 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2. dadurch gekennzeichnet, dass ein Nukleophil der Formel (II)

15

.. 20

EEP030635

23

 $R^1-Z-R^{1'}$ (II)

eingesetzt wird, mit

Z gleich O, N(R¹"), S(O₂), Si(R¹")(OH), C=O, C(H₂), C(H)(NO₂) oder N(CH₂CH=CH₂) und R¹, R¹ oder R¹" gleich oder verschieden, H, substituierte oder unsubstituierte, lineare, verzweigte oder cyclische Alkylgruppen, Alkenylgruppen mit 1 bis 22 Kohlenstoffatomen, Carboxylgruppen oder Arylgruppen bedeuten und die Reste R¹, R¹ über kovalente Bindungen miteinander verknüpft sein können, wobei R¹ und R¹ gleich oder unterschiedlich substituiert sein können,

- Verfahren nach zumindest einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass als Nucleophil Verbindungen der allgemeinen Formel (IIa) oder (IIb)
 - R¹-O-H (IIa), R¹-N-H (IIb)

eingesetzt werden,

wobei R¹, R¹ jeweils gleich oder verschieden, H, substituierte oder unsubstituierte, lineare, verzweigte oder cyclische Alkylgruppe, eine Alkenylgruppe mit 1 bis 22 Kohlenstoffatomen, einer Carboxylgruppe oder Arylgruppe bedeuten und die Reste R¹, R¹ über kovalente Bindungen miteinander verknüpft sein können.

- Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet,
- dass als Nucleophil Wasser, Alkohole, Phenole, Polyole, Carbonsäuren, Ammoniak und/oder primäre oder sekundäre Amine eingesetzt werden.
 - Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet,
- dass das Verfahren in einem Lösemittel durchgeführt wird, wobei als Lösemittel das Nucleophil (II) und/oder inerte organische Lösemittel eingesetzt werden.
 - 7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6,

dadurch gekennzeichnet, dass das Verhältnis von Carbenligand zu Metall [Mol/Mol] 0,01:1 bis 250:1 beträgt.









INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference O.Z. 6183-WO	FOR FURTHER ACTIO		cation of Transmittal of International Examination Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No.	International filing date (day		Priority date (day/month/year)
PCT/EP2003/006356	17 June 2003 (17.0	6.2003)	29 June 2002 (29.06.2002)
International Patent Classification (IPC) or n C07C 41/06, C07B 37/02, C07C			
Applicant	OXENO OLEFINCHE	МІЕ СМВН	
and is transmitted to the applicant a	ccording to Article 36.		national Preliminary Examining Authority
2. This REPORT consists of a total of	5 sheets, inclu	ding this cover	sheet.
amended and are the basis fo		taining rectific	ion, claims and/or drawings which have been ations made before this Authority (see Rule
These annexes consist of a to	otal of 4 sheets		
3. This report contains indications rela	ating to the following items:		
I Basis of the report			
п Priority			
III Non-establishment	of opinion with regard to nov	elty, inventive s	tep and industrial applicability
IV Lack of unity of inv	vention vention		
· · · ·	t under Article 35(2) with reg nations supporting such staten	ard to novelty, i nent	nventive step or industrial applicability;
VI Certain documents	cited		
VII Certain defects in the	he international application		
	s on the international applica	ion	
"" "			
	,		
Date of submission of the demand	Dat	e of completion	of this report
10 January 2004 (10.0)	1.2004)	12	October 2004 (12.10.2004)
2000			
Name and mailing address of the IPEA/EP	Aut	horized officer	
Facsimile No.	Tel	ephone No.	

Translation



Internation pplication No.
PC1/EP2003/006356

I. Basi:	s of the re	port	
1. With	n regard to	the elements of the international application:*	
	the inte	mational application as originally filed	
$\overline{\boxtimes}$	the desc	ription:	
	pages	1-20	, as originally filed
	pages		, filed with the demand
	pages	, filed with the letter of	
M	the clair	me:	
	pages	110	, as originally filed
	pages	, as amended (together	
	pages		, filed with the demand
1	pages	1-7 , filed with the letter of	07 May 2004 (07.05.2004)
\vdash	the drav	•	
╽╙	pages		, as originally filed
ŀ	pages		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
	pages	, filed with the letter of	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
l —	1		
▎└		nce listing part of the description:	
	pages		, as originally filed
	pages pages	, filed with the letter of	, filed with the demand
		·	
the	internation	o the language, all the elements marked above were available or furnished to the nal application was filed, unless otherwise indicated under this item. ts were available or furnished to this Authority in the following language	nis Authority in the language in which which is:
	the lan	guage of a translation furnished for the purposes of international search (under R	ule 23.1(b)).
	the lan	guage of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).	
	the lar or 55.3	eguage of the translation furnished for the purposes of international preliminary	y examination (under Rule 55.2 and/.
3. Wi	ith regard climinary e	to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the internation was carried out on the basis of the sequence listing:	ational application, the international
	contai	ned in the international application in written form.	
	filed to	ogether with the international application in computer readable form.	
_	furnisl	ned subsequently to this Authority in written form.	
	furnisl	ned subsequently to this Authority in computer readable form.	•
		tatement that the subsequently furnished written sequence listing does no ational application as filed has been furnished.	ot go beyond the disclosure in the
	_	tatement that the information recorded in computer readable form is identical turnished.	I to the written sequence listing has
4.	The a	nendments have resulted in the cancellation of:	
-		the description, pages	
1		the claims, Nos.	
ļ ·		the drawings, sheets/fig	
5.	This re	port has been established as if (some of) the amendments had not been made, so the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**	since they have been considered to go
in an	this repoi d 70.17).	sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invit t as "originally filed" and are not annexed to this report since they do n	not contain amendments (Rule 70.16
** An	y replacen	nent sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and ann	exed to this report.

v.	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
	citations and explanations supporting such statement

Statement			
Novelty (N)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO NO
Inventive step (IS)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

The D1 article (Angew. Chem.) published on 15 March 2002 describes concretely the telomerization of 1,3-butadiene with methanol as a nucleophile in the presence of a monocarbene-Pd⁽⁰⁾ complex of the structure 5 specified there (see figure 1 in D1) as a catalyst. In that article, the superiority of the tested carbene-Pd complex 5 over "standard catalysts" such as Pd(OAc)₂/3PPh₂ in terms of activity and selectivity is explicitly emphasized and depicted as a promising starting point for further study, also with other (still to be synthesized) monocarbene-Pd⁽⁰⁾ complexes.

In relation to this prior art, the telomerization method claimed in the present application differs by the use of a wide range of additional carbene-metal complexes and by the feed material, which is currently 1,3-butadiene mixed with other C₃, C₄ and/or C₅ hydrocarbons, as obtained, for example, in cracking processes for producing ethene in which refinery gases, naphtha, gas oil, LPG, NGL, etc. are reacted. The claimed method (claim 1) can therefore be regarded as novel (PCT Article 33(2)).

The problem addressed by the application in light of D1 can be regarded as that of determining whether the telomerization method proposed in D1 can also be used for industrial mixtures with C3-5 cuts and containing 1,3-butadiene. It was indeed found that the telomerization reaction can be carried out successfully with the range of carbene complexes of metals of the 8th to 10th groups of the Periodic Table of Elements as possible catalysts when the acetylene hydrocarbons contained in the 1,3-butadiene mixture and optionally 1,2-butadiene are removed prior to the telomerization reaction. In this connection, a test report was provided which shows the success of the reaction as a function of the acetylene content. The description does not contain an example of this.

D1, as the only available prior art document, does not concretely suggest anything to a person skilled in the art that could have readily led to the present invention either in terms of alternatives with regard to carbene structure or nature of the complex metal ("metals of the 8th to 10th groups") in relation to the Pd⁰-carbene complex catalysts concretely disclosed in D1 or in recognizing the negative influence on the reaction due to the presence of acetylene hydrocarbons in the carburizing mixture. An inventive step can therefore be recognized (PCT Article 33(3)).

The claimed method also meets the requirement of industrial applicability (PCT Article 33(4)).

The applicant should note the P document WO 02/100803 A, which describes Pd complexes with carbene structures of type III and IV for the telomerization of non-cyclic olefins, wherein, however, the carbene substituents R^2/R^3 are alkyl or aryl groups, but not heterocyclic groups.

However, that document is not considered part of the prior art for the purposes of PCT Article 33(2) and (3) within the PCT examination proceedings (see PCT Rule 64).